

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 9 月 9 日 (09.09.2005)

PCT

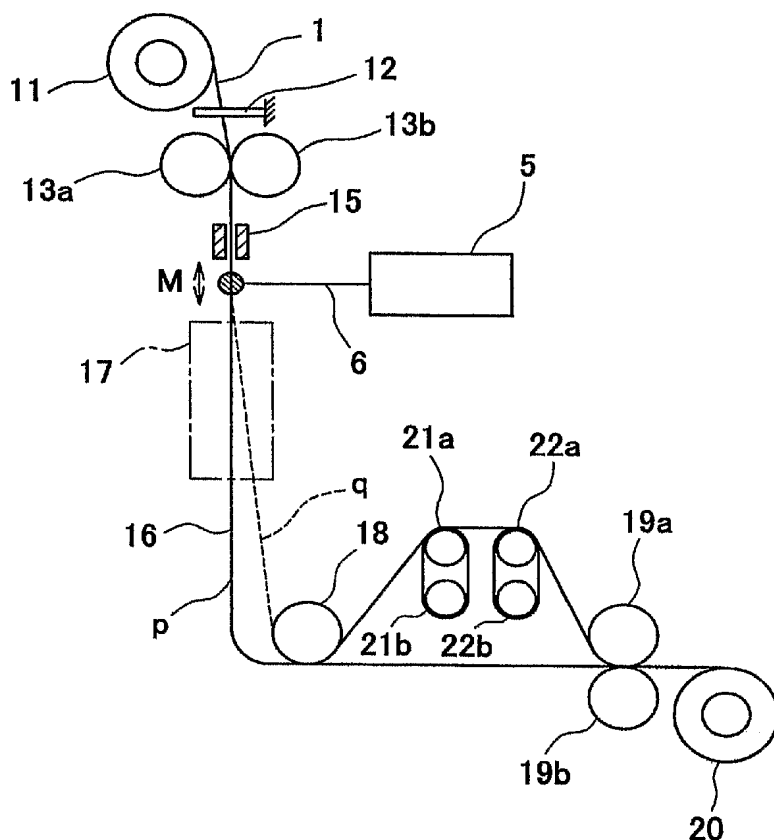
(10) 国際公開番号
WO 2005/083165 A1

- (51) 国際特許分類⁷: D02J 1/22 (72) 発明者; および
(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/003257 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鈴木 章泰
(SUZUKI, Akihiro) [JP/JP]; 〒407-0104 山梨県 甲斐市
竜地 7 9 8-1 1 3 Yamanashi (JP).
(22) 国際出願日: 2005 年 2 月 22 日 (22.02.2005) (74) 代理人: 栗原 和彦 (KURIHARA, Kazuhiko); 〒
175-0082 東京都 板橋区 高島平 3 丁目 1 1 番
5-1 0 0 2 号 栗原和彦特許事務所 Tokyo (JP).
(25) 国際出願の言語: 日本語 (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が
可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,
(26) 国際公開の言語: 日本語 BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM,
(30) 優先権データ: DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,
特願2004-052377 2004 年 2 月 26 日 (26.02.2004) JP ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会 LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA,
社山梨ティー・エル・オー (YAMANASHI TLO CO., NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,
LTD.) [JP/JP]; 〒400-8510 山梨県 甲府市 武田 4 丁目 SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
4-3 7 Yamanashi (JP). US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: DRAWN EXTREMELY FINE BIODEGRADABLE FILAMENT

(54) 発明の名称: 延伸された極細生分解性フィラメント



(57) Abstract: Production of an extremely fine biodegradable filament from a biodegradable filament, such as polylactic acid or polyglycolic acid, by simple means without the need to use a special high-precision high-level apparatus. There is provided a process characterized in that a biodegradable filament is heated by infrared luminous flux and the heated starting filament is drawn to 100 times the length or more by a tensile force of ≤ 10 MPa so that an extremely fine filament having undergone a high molecular orientation whose size is ≤ 12 μ m, generally 2 to 3 μ m is obtained.

(57) 要約: 本発明は、ポリ乳酸やポリグリコール酸などの生分解性フィラメントを、特殊で高精度で高レベルな装置を必要とせず、簡便な手段によって、極細の生分解性フィラメントを製造可能にすることにより、生分解性フィラメントを、赤外線光束で加熱し、その加熱された原フィラメントが、10MPa以下の張力により、100倍以上に延伸され、高度に分子配向された、12 μ m以下で、2 μ mから3 μ mといった極細フィラメントが得られることを特徴とする。

WO 2005/083165 A1



(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各*PCT*ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

明 細 書

延伸された極細生分解性フィラメント

5 技術分野

本発明は、延伸された生分解性フィラメントの製造方法およびその製造装置に関し、特にそれらの簡便な延伸手段によって得られる１００倍以上の高倍率で延伸されたポリ乳酸やポリグリコール酸等の極細生分解性フィラメントに関する。

10 背景技術

繊維の分野において、繊維径を小さくし、１０μ以下にすることに関し、種々の努力がなされている。それは、衣料用においては、独特の触感や高級感があり、また、繊維密度が上がることによりカバリングパワーが増すことで、保温性、断熱性、印刷性が増す。さらに、工業・農業用でも、ロープ等のフレキシブル性、保温性、フィルター特性もアップさせるなど、種々の点から、繊維性能を大幅に向上させるからである。

一方、繊維業界においても、地球環境の観点から、資源循環型社会への移行のため、農業用資材、オムツや包装資材等の家庭用・産業資材においても、生分解性繊維が強く求められてきている。しかし、原料コストの面もあるが、その製造方法、繊維性能の点でも、紡糸性や延伸性が悪く、繊維径の小さい繊維にすることが困難である

(例えば、特開平7-305227号)。また、代表的な生分解性繊維であるポリ乳酸繊維は、硬くて脆いフィラメントで、性能面からも問題があり、可塑剤等に依存していたが(例えば、特開2000-154425)、可塑剤等の添加物は、強度や耐熱性を損ない、繊維性能を悪くする。

- 5 生分解性繊維のもつ本質的問題点の一つに、用途により異なる生分解速度が求められており、農業用でも、ロープとマルチ用シートでは分解完了期間が異なり、オムツや家庭用拭き取り布とも異なる。これらの要望を、ポリマーの種類を変えずに、種々の分解速度を有する製品群を揃えることが望まれている。

- 10 また、生分解性繊維は、特に不織布の分野で多くの用途をもち、種々の製造方法が提案されている(例えば、特開2000-273750、特開2001-123371)。それらは、不織布のカバリングパワーや保温性、オムツにおける触感等の観点から、フィラメント径の小さな不織布が求められていた。しかし、紡糸・延伸性能が悪いことから、フィラメント径の小さい不織布を簡便にコスト安く製造することが困難であった。

- 15 また、広義の生分解性繊維として、生体内分解吸収性繊維があり(例えば、特開平8-182751号)、手術用縫合糸など、細くてしなやかで強度のあるフィラメントが求められている。また、医療面から生体内分解吸収性繊維からなる不織布も、縫合補綴材、癒着防止材、人工皮膚、細胞培養基材など種々の分野で使用されており
- 20 (例えば、特開2000-157622、特開2004-321484)、この分野においても、細くて強度のあるフィラメントからなる不織布が求められている。

一方、本発明は赤外線加熱によるフィラメントの延伸技術に関するものであるが、それらに関する技術は、従来より種々行われていた（例えば、特開2003-166115号公報、国際公開第00/73556号パンフレット、鈴木章泰 他1名 Journal of Applied Polymer Science、vol. 83、p. 1711-1716、2002年 米国、鈴木章泰 他1名 高分子学会予稿集 高分子学会 2001年5月7日 50巻4号 p787、鈴木章泰 他1名 Journal of Applied Polymer Science vol. 88、p. 3279-3283、2003年 米国、鈴木章泰 他1名 Journal of Applied Polymer Science vol. 90 p. 1955-1958、2003年 米国）。本発明は、これらの技術をさらに改良し、生分解性フィラメントに有効に適応できるようにしたものである。また、文献（Journal of Applied Polymer Science vol. 90 p. 1955-1958、2003年 米国）に示されているゾーン延伸法、ゾーン熱処理法は、本発明の延伸された生分解性フィラメントを再延伸または熱処理を行うにも有益な手段である。

したがって、本発明は生分解性繊維のもつ問題点を、上記本発明人の従来技術をさらに発展させて解決するものであって、その目的とするところは、安定した紡糸条件で太い生分解性フィラメントを紡糸し、それを簡便な手段で高倍率に延伸することで、容易に高度に延伸・配向された極細の生分解性フィラメントを得ることにある。また他の目的は、生体内分解吸収性ポリマーからなるフィラメントを極細にすることで、しなやかで強度のある手術用縫合糸などに使用されるフィラメントを得ることにある。また他の目的は、この簡便な延伸手段で、種々のフィラメント径を異にする製

品（糸、ロープ、布、不織布等）群で、生分解速度を異なる製品群とすることにある。

また、他の目的は、高度の分子配列性を有す極細生分解性フィラメントからなる長繊維不織布を製造可能とすることにある。さらに他の目的は、生体内分解吸収性フィラメントからなり、縫合補綴材、癒着防止材、人工皮膚、細胞培養基材などに使用され

5 　　る不織布を提供することにある。

発明の開示

本発明は、延伸された生分解性フィラメントに関する。生分解性フィラメントは、生分解高分子からなるフィラメントで、生分解高分子（J I S K 3 6 1 1）は、自然
10 　　界の土壌や海水中に生存する微生物や生体酵素によって比較的容易に分解され、その分解生成物が無害である高分子材料とされている。本発明における生分解性フィラメントとは、上記の生分解性高分子からなり、その高分子が熱可塑性高分子であり、例えば、下記の高分子を主成分（30%以上）とするフィラメントを云う。ポリ乳酸に代表される脂肪族ポリエステル、ポリカプロラクトン、ポリブチレンサクシネートや
15 　　それらの変性ポリマー等からなり、これらを主成分（30%以上）とし、他の成分を含むものでもあってもよい。

上記生分解性フィラメントは、地中で12ヶ月経過することにより、強度が、好ましくは1/2以下に、さらに好ましくは30%以下、最も好ましくは、10%以下になるフィラメントである。微生物分解性で、循環型社会に貢献するために、地中で
20 　　の生分解性を要件とするものである。

本発明の生分解性は、広義の生分解性を意味し、生体内分解吸収性を有する場合も含まれる。生体内分解吸収性とは、細胞、血液、結合組織など生体組織内で直接接触して使用され、生体内で分解するが、有害物質とはならず、生体内で吸収されてしまう性質をいう。本発明における生体内分解吸収性フィラメントとは、上記の生体内分解吸収性高分子からなり、例えば、次のような高分子からなるフィラメントを云う。ポリグリコール酸に代表される脂肪族ポリエステルや、ポリラクチド、ポリグルタミン酸、ポリ- γ -ジオキ酸、ポリ- α -リンゴ酸、ポリ- β -ヒドロキシ酪酸やそれらの変性ポリマーからなり、これらを主成分（30%以上）とし、他の成分を含むものであってもよい。

10 本発明は、延伸された生分解性フィラメントに関する。フィラメントは実質的に連続した長さを持つ繊維で、長さが短い（数ミリメートルから数センチメートル）短繊維とは区別される。生分解性フィラメントの断面は、異形断面と呼ばれる種々の形状をしたものや、中空フィラメントであってもよい。また、芯鞘複合繊維やサイドバイサイドの複合繊維などであってもよい。なお、本発明におけるフィラメントは、1本の
15 フィラメントからなるシングルフィラメントである場合と、複数のフィラメントからなるマルチフィラメントである場合がある。一本のフィラメントにかかる延伸張力は、「単糸あたり」と表現する場合があるが、それは「1本のフィラメント当たり」を意味し、マルチフィラメントでは、それを構成する「個々のフィラメント1本当たり」を意味する。

20 本発明は、原生分解性フィラメントを延伸する手段を提供するものである。本発

明における、原生分解性フィラメントとは、既に生分解性フィラメントとして製造されて、ポビン等に巻き取られたものであってもよいし、紡糸過程において、溶融または溶解生分解性フィラメントが冷却や凝固により生分解性フィラメントとなったものを、紡糸過程に引き続き使用され、本発明の延伸手段の原料となる生分解性フィラメントとして使用してもよい。生分解性樹脂、特にポリ乳酸やポリグリコール酸は、熱分解性が大きいので、あまり高温で紡糸することができないが、本発明の原フィラメントは太くてよいので、分子量の比較的大きなポリ乳酸等であっても比較的低温で紡糸することができる。

本発明の原生分解性フィラメントは、既に分子配向している場合であっても、延伸性はあまり損なわれないことを特徴とする。本発明において、赤外線光束によって延伸される延伸開始部において、原生分解性フィラメントの径以上の膨張部をもって延伸される場合がある。このような特異な現象は、通常の合成繊維の延伸では、観察されていない。この現象も、延伸温度を原生分解性フィラメントの融点前後まで上昇し、狭い領域での延伸を可能にしたことに由来するものと思われる。このように膨張部をもって延伸されることにより、100倍以上、あるいは500倍以上、好適な条件では1,000倍以上の延伸を可能にした。

本発明の原生分解性フィラメントは、赤外線加熱手段（レーザーを含む）により照射される赤外線光束により延伸適温に加熱される。赤外線は、原生分解性フィラメントを加熱するが、延伸適温に加熱される範囲がフィラメントの中心で、フィラメント軸方向から上下方向に4mm（長さ方向8mm）以内であることが好ましく、さら

に好ましくは3 mm以下、最も好ましくは2 mm以下で加熱される。本発明は、狭い領域で急激に延伸することにより、高度の分子配向を伴った延伸を可能にし、しかも超高倍率延伸であっても、延伸切れを少なくすることができた。なお、この場合の加熱範囲は、フィラメント軸に対して、上下方向に4 mm以内であって、フィラメント軸に対して直角方向には制限はない。なお、この赤外線光束が照射されるフィラメントがマルチフィラメントである場合は、上記のフィラメントの中心は、マルチフィラメント束の中心を意味する。

本発明の赤外線光束の照射は、複数箇所から照射されることが好ましい。生分解性フィラメントにおいて、フィラメントの片側のみからの加熱は、結晶化速度が大きく、延伸が困難なフィラメントが、非対称加熱により、さらに困難になるものと思われる。このような複数箇所からの照射は、赤外線光束を鏡によって反射させることにより、複数回、原フィラメントの通路に沿って照射させることによって達成できる。鏡は、固定型ばかりでなく、ポリゴンミラーのように回転するタイプも使用することができる。

また、複数箇所からの照射の別な手段として、複数光源からの光源を原フィラメントに複数箇所から照射する手段がある。比較的小規模のレーザー光源で安定してコストの安いレーザー発信装置を複数用いて、高パワーの光源とすることができ、本発明の生分解性フィラメントは高ワット密度が必要であることより、この複数光源を使用する方式は有効である。

赤外線は、波長0.78 μm から1 mmまでとされているが、高分子化合物のC

—Cボンドの $3.5\mu\text{m}$ の吸収を中心としており、 $0.78\mu\text{m}$ から $20\mu\text{m}$ 程度の近赤外の範囲が特に好ましい。これらの赤外線は、鏡やレンズにより、線状または点状に焦点を絞り、生分解性フィラメントの加熱域をフィラメントの中心に上下に 4mm 以下に絞り込むスポットヒータやラインヒータと呼ばれる加熱ヒータが使用できる。

- 5 特に、ラインヒータは、複数本の生分解性フィラメントを同時に加熱する場合に好適である。

本発明の赤外線加熱には、レーザーによる加熱が特に好ましい。中でも、 $10.6\mu\text{m}$ の波長の炭酸ガスレーザーと、 $1.06\mu\text{m}$ の波長のYAG（イットリウム、アルミニウム、ガーネット系）レーザーが特に好ましい。また、アルゴンレーザーも
10 使用することができる。レーザーは、放射範囲を小さく絞り込むことが可能であり、また、特定の波長に集中しているので、無駄なエネルギーも少ない。本発明の炭酸ガスレーザーは、パワー密度が $10\text{W}/\text{cm}^2$ 以上、好ましくは $20\text{W}/\text{cm}^2$ 以上、最も好ましくは、 $30\text{W}/\text{cm}^2$ 以上である。狭い延伸領域に高パワー密度のエネルギーを集中することによって、本発明の超高倍率延伸が可能となるからである。

- 15 一般に、延伸は生分解性フィラメント等を延伸適温に加熱して、それに張力が加わることにより行われる。本発明の延伸における張力は、自己の自重により与えられる張力により延伸されることを特徴とする。これは、一般の延伸が、ローラ間の速度差によって与えられる張力や、巻き取りによる張力によって延伸されることと原理的に異なる。本発明では、加熱部に加わる生分解性フィラメントの自重の大きさ（加熱
20 部から自由落下している距離によって定まる）を、自由落下距離を変化させることで

最適の張力を選択することができる。通常のローラ間の延伸では、100倍以上という大きな延伸倍率は、コントロールが困難であるが、本発明では、距離という簡便な手段で、容易にコントロールできることに特徴がある。この自重による延伸は、本発明の超延伸の立ち上げ方法に利用できる。原生分解性フィラメントが自重によっても
5 たらされる張力により延伸されて、ある程度の高倍率延伸が行われている状態に保ち、その後に、その高倍率に延伸されているフィラメントを引取装置に導き、所定の引き取り速度で延伸されていくようにすることができる。

また、本発明における張力を、非常に小さく、好ましくは10MPa以下、さらに好ましくは5MPa以下、最も好ましくは3MPa以下にすることで延伸される。
10 10MPaを越えると、延伸切れが生じ易くなり、高倍率延伸するためには、このような張力範囲にあることが望ましい。このように小さい延伸張力で、延伸倍率が100倍以上、条件によっては500倍以上、あるいは1,000倍以上と、極端に大きな倍率が実現できるのは、延伸温度が融点前後と、極端に高い温度を維持しつつ、非常に狭い延伸領域であるため、生分解性フィラメントの切断を免れて変形できるもの
15 と思われる。生分解繊維の通常のローラ間延伸では、数10MPaから数100MPaという張力で延伸されていることと、大幅に異なる範囲で延伸されていることに特徴がある。

本発明において、得られた延伸生分解性フィラメントの延伸倍率が100倍以上、好ましくは200倍以上、さらに好ましくは500倍以上、最も好ましくは1,000倍以上の超高倍率で延伸されることを特徴とする。通常の生分解性繊維、その代表
20

であるポリ乳酸フィラメントの延伸では、3～7倍であり、PET繊維のスーパードローイングでも10数倍程度である。このように超高倍率の延伸を可能にしたのは、非常に狭い領域での延伸を可能にしたことにより、その間の延伸温度を原生分解性フィラメントの融点前後まで上昇することができ、そのために延伸張力が小さくなるが、

5 その小さい延伸張力と超高倍率を制御する手段を見いだしたことに本発明の特徴がある。このように超高倍率延伸を可能にしたことにより、フィラメント径が10 μ m以下、さらに5 μ m以下、2 μ mや3 μ mといった超極細生分解性フィラメントの製造を可能にした。また、延伸倍率が高いことは、生分解性フィラメント製造の生産速度を数百倍に高めたことになり、生産性の面からも意義がある。

10 本発明のフィラメントを送り出す手段から送り出された原生分解性フィラメントについて延伸が行われる。送り出し手段は、ニップローラや駆動されたローラ群などにより、一定の送り出し速度で生分解性フィラメントを送り出すことが出来るものであれば、種々のタイプのものが使用できる。

本発明の送出手段により送り出された原生分解性フィラメントは、赤外線光束が

15 原フィラメントに当たる直前で、原フィラメントの位置を規制する案内具を設けることが好ましい。直前は、好ましくは100mm以内、さらに好ましくは50mm以内、20mm以内が最も好ましい。原フィラメントの赤外線光束による加熱は、非常に狭い範囲において加熱されることが特徴で、その狭い範囲の加熱を可能にするために、生分解性フィラメントの位置を規制する必要がある。下記に述べる送風管の出口の形

20 状によって、そのような機能を持たすことも可能であるが、送風管は生分解性フィラ

メントを送る気体の通気や、生分解性フィラメントの通し易さに重点を置き、その後
に簡便な案内具で生分解性フィラメントの位置を規制することが好ましい。従来の通
常の延伸では、延伸張力が大きいので、案内具は必要としないが、本発明では、延伸
張力が小さく、延伸倍率が大きいので、延伸点のほんの少しのゆらぎや変動は、延伸
5 の安定性に大きく影響する。したがって本発明では、延伸点の直前に案内具を設ける
ことで、延伸の安定性に大きく寄与することができた。本発明における案内具は、細
い管や溝、コーム、細いバーの組み合わせなどが使用できる。

上記案内具においては、案内具の位置を微調整できる位置制御機構を有すること
が望ましい。レーザービームの狭い領域に、フィラメントの走行位置を正確にフィッ
10 トさせるためには、案内具をX Y方向に位置制御する必要がある。

フィラメントの送り出し手段により送り出された原生分解性フィラメントは、さ
らに送風管を通して、送風管中を原生分解性フィラメントの走行方向に流れる気体
によって送られることが望ましい。送風管を流れる気体は、通常、室温の気体を使用さ
れるが、原生分解性フィラメントを予熱したい場合は、加熱エアーが使用される。ま
15 た、原生分解性フィラメントが、酸化されるのを防ぐ場合は、窒素ガス等の不活性ガ
スを使用され、水分の飛散を防ぐ場合は、水蒸気や水分を含む気体を使用される。な
お、送風管は、必ずしも筒状である必要がなく、溝状であってもよく、それらの中を
気体とともに原生分解性フィラメントが流れればよい。管の断面は、円が好ましいが、
矩形でもその他の形状でもよい。管を流れる気体は、枝分かれした管の一方より供給
20 してもよく、管が2重になっており、外側の管から内側の管へ、孔などによって供給

してもよい。合成繊維のインターレース紡糸やタスラン加工に使用されるフィラメントの空気交絡ノズルも本発明の送風管として使用される。また、本発明における不織布製造のように、自由落下により延伸する場合、本発明の送風管によるエアの勢いで、フィラメントに延伸張力を与えることもできる。

- 5 本発明における生分解性フィラメントの延伸においては、複数本の原生分解性フィラメントをまとめて、同一赤外線光束中で延伸できることを特徴とする。通常赤外線光束中で複数本の原フィラメントをまとめて延伸すると、延伸フィラメント間で膠着が生じるが、ポリ乳酸では、結晶化速度が速いため、膠着することなく延伸することができる。複数本とは、2本以上、場合によっては、5本以上も延伸することがで
- 10 きる。

- 本発明の延伸された生分解性フィラメントは、その後続工程で、ボビンやチーズ等に巻き取られ、ボビン巻やチーズ巻の形態の製品とされる。これらの巻き取りにおいては、延伸された生分解性フィラメントは、トラバースされながら巻き取られることが望ましい。トラバースされることにより、均一な巻き上げ形態を確保できるから
- 15 である。極細生分解性フィラメントでは、糸切れや毛羽の発生が最も問題となるが、本発明では、高度に分子配向しているためと、延伸張力が小さいため、小さな巻取張力で巻き取ることが可能となるので、糸切れや毛羽を少なくできることも本発明の特徴である。なお、複数本の原フィラメントを同時に延伸して、同時に巻き取る際には、撚糸機で撚をかけながら巻いて行くこともできるが、本発明はフィラメントの走行速
- 20 度が速いので、インターレース交絡法によりフィラメント間を交絡して巻き取ること

が好ましい。

本発明の延伸工程の後に、加熱ゾーンを有する加熱装置を設け、延伸された生分解性フィラメントを熱処理することもできる。加熱は、加熱気体中を通過させる手段や、赤外線加熱等の輻射加熱、加熱ローラ上を通す、またはそれらの併用などの手段
5 で行うことができる。熱処理は、延伸された生分解性フィラメントの熱収縮を小さくし、また、結晶化度を上げ、生分解性フィラメントの経時変化を小さくし、ヤング率を向上させるなど、種々の効果をもたらす。なお、本発明の不織布の場合では、熱処理は、コンベア上で行ってもよい。

本発明の延伸された生分解性フィラメントを、さらに延伸した後に巻き取ること
10 もできる。後段階の延伸の手段は、前の段階で行った赤外線延伸手段を用いることもできるが、前の段階で十分に高倍率延伸されて、既に極細生分解性フィラメントが得られている場合は、通常のコデットローラ等のローラ間延伸や、ピン延伸などを用いることもできる。また、本発明人に開発された (Journal of Applied Polymer
Science vol. 90、p. 1955-1958、2003年、米国)、ゾーン延伸
15 法やゾーン熱処理法は、本発明の延伸された生分解性フィラメントを、さらに延伸を行うことにおいても、特に有益な手段である。このゾーン延伸法によって、フィラメント径が $3\mu\text{m}$ 以下、 $2\mu\text{m}$ に到る超極細の延伸された生分解性フィラメントを得ることができた。

本発明では、一定の延伸張力、延伸倍率等を赤外線光束のワット密度をコントロ
20 ールすることで、安定した延伸を制御することに特徴がある。また、延伸されたフィ

ラメント径を測定して、それをフィードバックすることで、巻取速度または送出速度、または巻取速度と送出速度の両方をコントロールし、一定のフィラメント径の製品が得られるように制御することができる。本発明においては、延伸倍率が大きいため、延伸されたフィラメント径が変動しやすいが、フィラメント径を常に制御することで、

5 安定した生産を行うことができる。

本発明における延伸された生分解性フィラメントを、走行するコンベア上に集積することによって、延伸された生分解性フィラメントからなる不織布を製造することができる。近年、不織布は、単に織物の代替というだけでなく、不織布独特の特性が注目されて、種々の業界で需要が活発化している。その中で、極細繊維の不織布と

10 して、メルトブローン不織布があり、熔融フィラメントを熱風で吹き飛ばすことで3 μm 前後のフィラメントとし、コンベア上に集積させて不織布にしたものが、エアーフィルターを中心に使用されている。しかし、このメルトブローン不織布を構成するフィラメントは、0.1 cN/dtex前後と、通常の未延伸繊維よりも弱い強度であり、また、ショットまたはダマと呼ばれる樹脂の小さい塊が多数存在するものである。本発明の延伸された生分解性フィラメントからなる不織布は、メルトブローン不織布と同様の3 μm 前後のフィラメント径を有していながら、生分解性フィラメントが高度に分子配向しているので、通常の延伸された合成繊維に近い強度を有している。

しかも、ショットやダマを全く含まない不織布とすることができる。本発明の不織布は、極細フィラメントであることによる緻密な生地や光沢、軽量、断熱、保温、撥水、
20 印刷適正のアップなどの効果に加えて、生分解性フィラメントの生分解速度が速くな

るという特性も有する。また本発明の生分解性フィラメントからなる不織布は、フィラメント径が均一なため、いずれのフィラメントも分解速度は同じであるという特徴を有する。特にポリ乳酸やポリグリコール酸のフィラメントは、硬くて脆いフィラメントであるが、本発明により極細のフィラメントとすることで、柔らかく、触感の良いものとなり、オムツ等の生理用品にも使用できる特性が生じる。なお、背景技術の項で記載したように、生分解性フィラメントからなるспанボンド不織布については、従来種々検討されているが、本発明のフィラメントは、それらのспанボンド不織布より、強度があつてフィラメント径が小さい。

不織布は、通常、何らかの繊維間の交絡を行つてシート状にされている。本発明では、フィラメント径が非常に小さいので、単位重量あたりの生分解性フィラメント数が極端に多い。したがつて、特に交絡工程を設けなくても、メルトブローン不織布同様、生分解性フィラメントをコンベア上に集積する際の、コンベア下からの負圧吸引で生分解性フィラメントが絡み合い、簡単なプレス程度で、シート化される場合も多い。勿論、通常の不織布で行われている、熱エンボスやニードルパンチ、ウオータージェット、接着剤接合等の手段を用いることもでき、用途によって選択される。極細繊維不織布の大きな用途であるフィルター用途では、不織布をエレクトレット加工することで、捕集効率を桁違いに大きくすることができ、本発明の不織布も、エレクトレット加工してフィルター分野に向けることができる。本発明の不織布の製造において、コンベア上に生分解性フィラメントを集積させる際、コンベア背面からの負圧を行うが、この負圧によるエアーの吸引によるエアーの流れや、また、積極的にエアー

のサッカー等を用いることによるエアの流れが、生分解性フィラメントの延伸における延伸の張力として働く場合もあり、その場合も、本発明の延伸張力に含められる。

本発明は、簡便な延伸手段を用いることにより、種々の異なるフィラメント径が生成できることを特徴とする。生分解フィラメントは、フィラメント径により生分解速度が異なる。径の大きいフィラメントは生分解速度が遅く、径の小さいフィラメントは分解速度が速い。したがって、生分解性フィラメント製品、例えばロープについて、フィラメント径が数10 μm から数 μm と異なる製品群を揃え、用途やその地方の気候等によって生分解速度を異にする製品群とすることができる。また、本発明の生分解性フィラメント不織布で農業用マルチシートを製造する際も、用途により、フィラメント径を変えることにより、生分解性をコントロールした製品群とすることができる。

本発明におけるフィラメントの分子配向は、複屈折で表示できる。本発明の延伸されたポリ乳酸フィラメントの複屈折は、非常に高い値を示し、高度に分子配向していることがわかる。ポリ乳酸の結晶の複屈折値は、0.033程度と云われている。

本発明による延伸されたポリ乳酸フィラメントの複屈折値は、よく延伸されることによって、0.015以上、さらに0.020を越えるものも多く、非常によく延伸されたものでは、0.030を越えたものも存在する。また、再延伸することにより、0.04に到る複屈折も得られている。その意味で、本発明の延伸されたポリ乳酸は、非常に高度に配向されていることがわかる。本発明における複屈折の測定法は、レーザードیفракショ

なお、本発明におけるフィラメントのX線配向度 f は、下式のX線半価幅法により示される。

$$f(\%) = [(90 - H/2) / 90] \times 100$$

ここで、 H は、生分解性繊維の結晶の主ピークを有する面のデバイ環に沿っての強度分布の半価を示す。本発明による延伸されたポリ乳酸フィラメントのX線配向度は、よく延伸されることによって、60%以上、さらに70%を越えるものも多く、非常によく延伸されたものでは、75%を越えたものも存在する。また、本発明により延伸されたフィラメントを、ゾーン延伸やゾーン熱処理を行うことにより、X線配向度が、89.9%に達するものも生じた。上記、X線配向度は、もっと配向度が高いと想像される。しかし、X線配向度を測定するためには、フィラメントの束として測定する必要があるが、本発明の延伸されたフィラメントの径が小さいため、その膨大な数のフィラメントの束の全てのフィラメントを一定方向に配列させることが、技術上困難であり、そのことに起因して、X線配向度が低めに出ているものと思われる。

本発明における延伸倍率 λ は、原フィラメントの径 d_0 と延伸後のフィラメントの径 d より、下記の式で表される。この場合、フィラメントの密度は一定として計算する。フィラメント径の測定は、走査型電子顕微鏡 (SEM) で、350倍、または1000倍の倍率での撮影写真に基づき、10点の平均値で行う。

$$\lambda = (d_0 / d)^2$$

発明の効果

本発明は、生分解性フィラメントについて、特殊で高精度・高レベルな装置を必要とせず、簡便な手段で容易に極細フィラメントを得ることができた。それによって得られた極細フィラメントは、 $12\mu\text{m}$ 以下、さらに $5\mu\text{m}$ 以下で、 $2\mu\text{m}$ や $3\mu\text{m}$ といった極細フィラメントを得、延伸されフィラメントのゾーン延伸法やゾーン熱処理法等の再延伸で、 $3\mu\text{m}$ 以下、 $2\mu\text{m}$ といった超極細フィラメントも得ることができた。これらの極細生分解性フィラメントは、 100 倍以上、さらに 500 倍以上、 1000 倍以上という超高倍率延伸によって実現できたものであり、このような高倍率な延伸を実現する手段を提供できたことは、極細生分解性フィラメントが簡便に得られると云うばかりでなく、極細生分解性フィラメントを高速で生産できることを意味しており、生産性の面からの意義が大きい。

さらに、本発明により極細フィラメントからなる長繊維不織布を製造できた。市場にある極細フィラメントからなる不織布として、メルトブローン不織布があるが、フィラメント強度がなく、また、フィラメント径が $1\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ と不揃いで、またショットやダマと呼ばれる小さな樹脂の塊も混在する。本発明の不織布は、そのような欠点がなく、フィラメント径が $\pm 1\mu\text{m}$ 以内と極めて揃っており、また生分解性を有するので、農業用やオムツなど、生分解性が求められている種々の用途に使用できる。また、生分解性フィラメントからなるспанボンド不織布が市場で検討されているが、本発明のフィラメントからなる不織布は、強度もあり、フィラメント径が小さい等の効果を有する。

本発明は、径が異なることによる生分解速度を異にするフィラメントからなる繊維製品、例えば、糸、ロープ、布、ニット、不織布の製品群を製造し、それぞれの目的とする製品の生分解速度に合わせて製品群を構成することができた。また、 $2 \sim 3 \mu$ という極細でしかも高度に分子配向したフィラメントが製造でき、極細であるので、

5 生分解速度が大きいフィラメントとすることができた。

また本発明は、ポリグリコール酸など、生体内分解吸収性ポリマーからなる極細フィラメントを得ることが出来、細くてしなやかな手術用縫合糸とすることができ、フィラメント径が小さいので、生体内での分解性もよい。

さらに本発明は、生体内分解吸収性ポリマーの極細フィラメントからなる不織布
10 を提供する。フィラメント径が細いので、単位面積当たりのフィラメント数が非常に多くなり（繊維径の2乗の逆数に比例）、カバリングパワーが増す。また本発明の極細フィラメントからなる不織布は、ダマがないこと、フィラメント径が揃っていること、フィラメントの強度が大きいことなどの特徴も、生体内分解吸収性不織布としての特性に適合する。したがって、本発明の生体内分解吸収性フィラメントからなる
15 不織布は、縫合補綴材、癒着防止材、人工皮膚、細胞培養基材など広い用途に適合する。

図面の簡単な説明

第1図は、本発明の延伸された生分解性フィラメントを製造するための連続法の
20 プロセス概念図である。

第2図は、本発明の原フィラメントに赤外線光束を複数箇所から照射するための鏡の配置の例を示し、A図は平面図、B図は側面図である。

第3図は、本発明の原フィラメントに赤外線光束を複数箇所から照射する他の例で、複数の光源を有する場合で、平面図で示す。

5 第4図は、本発明の延伸された生分解性フィラメントを、複数本再延伸場合のプロセスの概念図である。

第5図は、本発明に使用される送風管の概念図である。

第6図は、本発明の延伸された生分解性フィラメントからなる不織布を製造するためのプロセスの概念図である。

10 第7図は、本発明におけるポリ乳酸フィラメントを延伸したことによる、フィラメントの径と複屈折等を示す実験結果の図表である。

第8図は、本発明におけるポリ乳酸フィラメントを延伸したことによる、フィラメントの径と複屈折等を示す他の実験結果の図表である。

15 第9図は、本発明における延伸されたポリ乳酸フィラメントを、再延伸したことによる、フィラメントの径と複屈折等を示す実験結果の図表である。

第10図は、本発明におけるポリグリコール酸フィラメントを延伸したことによる、フィラメントの径と複屈折等を示す実験結果の図表である。

第11図は、本発明におけるポリグリコール酸フィラメントを延伸したことによる、フィラメントの径と複屈折等を示す他の実験結果の図表である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施の形態の例を、図面に基づいて説明する。第1図は、本発明の連続法のプロセスの例を示した。原生分解性フィラメント1は、リール11に巻かれた状態から繰り出され、コーム12を経て、送出ニップローラ13a、13bより

5 一定速度で送り出される。送り出された原フィラメント1は、案内具15で位置を規制されて一定速度で下降する。案内具15は、レーザーの照射位置とフィラメントの走行位置を正確に定めるもので、図では、内径が0.5mmの注射針を使用した、

10 細いパイプやコームや第6図で示すスネイルワイヤなども使用できる。案内具15の直下に、レーザー発振装置5より、走行する原フィラメント1に対して、一定幅の加熱域Mにレーザー光束6が照射される。このレーザー光束6は、第2図、第3図に示す複数箇所からの照射が好ましい。レーザー光束6により加熱され、原フィラメントの自重または引取ニップローラ19によってもたらされる延伸張力により、原フィラメントは延伸されて、延伸された生分解性フィラメント16となって下降し、下降過程に備えられている熱処理ゾーン17を通過することが望ましい。延伸された生分解

15 性フィラメント16は、滑車18を通り、引取ニップロール19a、19bを経て、巻取りリール20で巻き取られる。この場合において、滑車18への延伸された生分解性フィラメント16の通路は、生分解性フィラメントの自由落下の軌跡pとして延伸される場合と、滑車18への直線的な軌跡qとして延伸される場合と、それらの中間的な軌跡として延伸される場合がある。軌跡qおよび軌跡pと軌跡qの中間位置では、

20 引取テンションが延伸の張力に及ぶが、その場合は、延伸張力が10MPa以下であ

ることが望ましい。延伸張力は、滑車 18 に張力測定機構を設けることもできるが、他の方法として、バッチ法のロードセル測定により、同一送出速度やレーザー照射条件、延伸倍率等の関係から推定することができる。引取巻取りル 20 で巻き取る前に、加熱されている延伸ロール 21 a、21 b と延伸ロール 22 a、22 b 間で、延伸ロール 21 と 22 の速度の比で、さらに延伸することもできる。この場合の延伸された生分解性フィラメントの熱処理ゾーン 17 は、延伸ローラ 22 の後に設けることが望ましい。また、複数の原フィラメントが同時に延伸された場合は、引取りル 20 の直前で、インターレース法などでフィラメント間を空気交絡しておくことが望ましい。また、滑車 18 や引取ローラ 19 に入る直前などの位置に、フィラメント径測定装置を設け、測定されたフィラメント径をフィードバックすることにより、引取速度または送出速度等を制御して、常に一定のフィラメント径の製品を得ることができる。

第 2 図に、本発明で採用されている赤外線光束を複数箇所から原生分解性フィラメントに照射する手段の例を示す。図 A は平面図であり、図 B は側面図である。赤外線照射器より照射された赤外線光束 31 a は、原フィラメント 1 の通る領域 P (図の点線内) を通って、鏡 32 に達し、鏡 32 で反射された赤外線光束 31 b となり、鏡 33 で反射されて赤外線光束 31 c となる。赤外線光束 31 c は領域 P を通って、最初の原フィラメントの照射位置から 120 度後から、原フィラメントを照射する。領域 P を通過した赤外線光束 31 c は、鏡 34 で反射されて、赤外線光束 31 d となり、鏡 35 で反射されて、赤外線光束 31 e となる。赤外線光束 31 e は領域 P を通って、最初の原フィラメントの照射位置の先ほどの赤外線光束 31 c とは逆の 120 度後か

ら、原フィラメント1を照射する。このように、原フィラメント1は、3つの赤外線光束31a、31c、31eにより、120度ずつ対称の位置から均等に原フィラメント1を加熱することができる。

第3図に、本発明で採用されている、赤外線光束を複数箇所から原フィラメント
5 に照射する手段の他の例で、複数の光源を使用する例を平面図で示す。赤外線放射装置から放射された赤外線光束41aは、原生分解性フィラメント1へ放射される。また、別の赤外線放射装置から放射された赤外線光束41bも、原生分解性フィラメント1へ放射される。さらに別の赤外線放射装置から放射された赤外線光束41cも、原生分解性フィラメント1へ放射される。このように、複数の光源からの放射は、比
10 較的小規模の光源で安定したコストの安いレーザー発信装置を複数用いて、高パワーの光源とすることができる。なお、図では光源が3個の場合を示したが、2個でもよいし、4個以上も使用できる。特に、複数本延伸では、このような複数光源による延伸が特に有効である。

第4図は、既に本発明により延伸された生分解性フィラメントを、複数本同時に
15 送り出し、同時に延伸する例について示す。ポビン51a、51b、51c、51d、51eに巻かれた延伸された生分解性フィラメント52a、52b、52c、52d、52eは、それぞれ送風管53とパイプ54で送られ、エアーマニホールド55に集められ、フィラメントの集合体56となる。なお、送風管53とパイプ54中の生分解性フィラメント52は、図では煩雑になるので示していない。未延伸原フィラメン
20 トは強度やヤング率が小さく、延伸されたフィラメント52は、繊度が小さいため、

張力に耐えないので、ボビン51は、一定速度で回転し送出張力を小さくされていることが好ましい。送り出されたフィラメントの集合体56は、ピッチ可変機構57で、走行位置がレーザービーム58の中心になるように調整される。ピッチ可変機構57には、案内具59が設けられており、その位置を、ラック60とギア61により、フィラメントの走行位置が微調整される。ピッチ可変機構57は、図では一方向だけに調整される例を示したが、直角方向にギアのセットを設けて、XY軸方向に調整させることができる。ピッチ可変機構57で位置を調整されたフィラメント集合体56は、レーザービーム58で加熱されて延伸され、引取機構62によって引取速度を一定に調整され、モータMで駆動されている巻取ボビン63に巻き取られていく。本図において、レーザービーム58は、1本の線で示したが、第2図や第3図の複数の光束であることが望ましい。また、図では、ボビンに直接巻かれている例を示したが、加撚して巻かれることや、インターレース等によりフィラメント相互間を絡ませて巻かれることが好ましい。また、第4図では、赤外線による再延伸の例を示したが、再延伸は、通常のローラ延伸やゾーン延伸等の他の延伸手段を用いることもできる。なお、送風管53やパイプ54へ導入された空気が、原フィラメント1の通路に導かれ、フィラメントが空気の流れによって送られ、エアーの送り出される風速により与えられる張力は、本発明の延伸張力に加味される。なお、第4図は、延伸されたフィラメントの再延伸の例として説明したが、同様の機構で、未延伸原フィラメントの複数本延伸の手段としても使用される。

第5図に、本発明で使用される送風管の例を示す。図Aは、フィラメント1が通

過する主管 7 1 に、矢印 a より導入された空気が枝管 7 2 を通じて、主管 7 1 と合流する。図 B は、二重管 7 3 で、内部が空洞になっており、矢印 b より導入された空気は、二重管内壁に設けられた多数の孔 7 4 により、フィラメントの通路へ導かれる。

図 C は、インターレース紡糸に使用される空気交絡ノズル 7 5 として使用されている

5 ノズルの例で、両サイド c 1、c 2 から空気が吹き込まれる。このように、フィラメントの走行方向に積極的に空気が送り込まれるようにしているのは、本発明では、延伸張力が小さいため、案内具等の抵抗によってフィラメントの走行が阻害されることのないようにするためであり、また、不織布製造の場合のように、巻取テンションで積極的に張力が付加できない場合などで、空気の勢いで、延伸張力を付加することも

10 できる。また、図 C のノズルは、本発明の延伸後のインターレース巻取に際しても使用できる。なお、第 5 図の送風管は管状のものの例を示したが、一部が解放されて、溝状になっているものも使用される。

第 6 図に、本発明の不織布の製造の例を示す。多数の原生分解性フィラメント 1 がボビン 8 1 に巻かれた状態で、架台 8 2 に取り付けられている（煩雑さを避けるため 3 本のみ図示する）。これらの原生分解性フィラメント 1 a、1 b、1 c は、案内具であるスネイルワイヤ 8 3 a、8 3 b、8 3 c を通じて、送出ニップロール 8 4 a、

15 8 4 b の回転により送り出されるようになっている。送り出された原生分解性フィラメント 1 は、自重で下降する過程で、赤外線放射装置 8 5 より放射されるライン状の赤外線光束により加熱される。原生分解性フィラメント 1 の走行過程での赤外線光束

20 による加熱部 N の範囲を斜線で示す。原生分解性フィラメント 1 に吸収されずに通過

した光束は、点線で示した凹面鏡 8 6 で反射して、加熱部 N に集光するように戻される。赤外線放射装置 8 5 側にも、凹面鏡を設ける（但し、赤外線放射装置よりの光束の進行部は窓が開いている）が、図では省略してある。原生分解性フィラメント 1 は、加熱部 N における赤外線の放射熱により加熱され、その部分より下での生分解性フィラメント自身の自重により延伸されて、延伸生分解性フィラメント 8 7 a、8 7 b、8 7 c となり、走行しているコンベア 8 8 上に集積し、ウェブ 8 9 を形成する。コンベア 8 8 の裏面からは、負圧吸引により矢印 d の方向にエアーが吸引され、ウェブ 8 9 の走行の安定性に寄与する。負圧 d が延伸された生分解性フィラメント 8 7 に及ぼす張力で牽引され、生分解性フィラメントの細化や配向度のアップに寄与し、これらの張力も本発明の自重による張力の一部と見なされる。図では省略してあるが、コンベア 8 8 の進行方向に、原生分解性フィラメント 1 の多数のボビン 8 1 を多段に設置し、ニップローラ 8 4 や赤外線放射装置等を多段に設けて、ウェブ 8 9 の生産性をアップするようにされている。なお、このように進行方向に多段に送出ニップロール 8 4 等を設ける場合、赤外線放射装置 8 5 や、凹面鏡 8 6 は、数段分を兼ねることもできる。なお、延伸張力が、フィラメントの自重やコンベア下からの負圧では不十分で、延伸や配向が小さい場合は、原フィラメント 1 が赤外線光東部へ導かれる際に、送風管によって導き、送風管のエアーの送り出される風速により与えられる張力も加味して使用される。

原生分解性フィラメントとしてのポリ乳酸ポリマーからなる未延伸フィラメント（フィラメント径 $75\mu\text{m}$ 、ガラス転移温度 57°C 、結晶化温度 103°C 、引張強度 55MPa 、複屈折 0.0063 ）を使用した。この原フィラメントを使用し、第1図の延伸装置に、赤外線照射装置は第2図の鏡を使用して延伸した。この時のレーザー発振装置は、（株）鬼塚硝子社製の最大出力 10W の炭酸ガスレーザー発振装置を使用した。その際のレーザービーム径は、 4mm である。この原フィラメントの送出速度 $0.5\text{m}/\text{min}$ で送り出し、レーザーパワー密度を $24\text{W}/\text{cm}^2$ とし、巻取速度を変化させて実験した。実験により採取した延伸フィラメントのフィラメント径、フィラメント径から計算した延伸倍率、延伸されたフィラメントの複屈折とX線配向度、そのフィラメント径や配向度に到る延伸張力をバッチ法から求めた値を、第7図に示す。第7図より、適当な条件では、フィラメント径は、 $5\mu\text{m}$ 以下で、 $3\mu\text{m}$ から $1.2\mu\text{m}$ にも達した。延伸倍率は 100 倍以上であって、 $1,000$ 倍以上、 $3,900$ 倍にも達している。複屈折は、 0.015 （ 0.01478 を四捨五入）以上、 0.020 以上、 0.033 にも達している。X線配向度は、 60% 以上、 70% を超え、 75% にも達している。このような場合の、延伸張力は、 0.3MPa から 2.5MPa の範囲にある。

実施例2

実施例1の条件で、レーザーパワー密度を $12\text{W}/\text{cm}^2$ とした場合の例を、第8図に示す。第8図より、フィラメント径は、 $5\mu\text{m}$ 以下になり、延伸倍率は 100 倍以上であって、 500 倍以上に達している。このような場合の、延伸張力は、 $0.$

3 MPa から 2.7 MPa の範囲にある。

実施例 3

本発明の実施例 1 の方法により得られたフィラメントをゾーン延伸法、ゾーンアニーリング法によって再延伸、および熱処理を行った。結果を第 9 図に示す。第 9 図より、延伸倍率は、3900 倍から 15000 倍にも達し、複屈折は 0.030 以上、0.040 以上にも達して、高度に分子配向していることがわかる。またフィラメント径も、3 μm 以下で 2 μm の超極細フィラメントが得られた。

実施例 4

原生分解性フィラメントとしてのポリグリコール酸（低粘度品、240°Cでの粘度 1.24 $\times 1000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ ）からなる未延伸フィラメント（フィラメント径 82.34 μm 、融点温度 219°C、引張強度 89 MPa、複屈折 0.0043）を使用した。この原フィラメントを使用し、実施例 1 と同様の延伸装置、赤外線照射装置により延伸した。この原フィラメントの送出速度 0.15 m/min で送り出し、巻取速度を変化させて実験した。実験により採取した延伸フィラメントのフィラメント径、フィラメント径から計算した延伸倍率、延伸されたフィラメントの複屈折を、第 10 図に示す。第 10 図より、適当な条件では、フィラメント径は、5 μm 以下で、3 μm から 2.2 μm にまで細くなっている。延伸倍率は 100 倍以上であって、1,000 倍以上、1,300 倍にも達している。複屈折は、0.0015 以上、0.020 以上、0.027 にも達している。

20 実施例 5

実施例 4 の条件で、原ポリグリコール酸を、中粘度品（240℃での粘度 3.4
1 × 1000 Pa · S）からなる未延伸フィラメント（フィラメント径 207 μm、
融点温度 218℃、引張強度 0.11 GPa、複屈折 0.0013）を使用した。こ
5 の原フィラメントを使用し、実施例 4 と同様の延伸装置、赤外線照射装置により延伸
した。この原フィラメントの送出速度 0.5 m/min で送り出し、巻取速度を変化
させて実験した。実験により採取した延伸フィラメントのフィラメント径、フィラメ
ント径から計算した延伸倍率、延伸されたフィラメントの複屈折を、第 11 図に示す。
第 11 図より、適当な条件では、フィラメント径は、10 μm 以下で、5 μm にまで
細くなっている。延伸倍率は 100 倍以上であって、500 倍以上、1,500 倍に
10 も達している。複屈折は、0.015 以上で、さらに 0.020 以上で、0.026
にも達している。

実施例 6

本発明の実施例 4 の方法により得られた 2.5 μm の延伸フィラメントを、17
0℃でさらに延伸することにより、フィラメント径 1.82 μm で、複屈折は 0.0
15 56 のフィラメントが得られた。市販のポリグリコール酸製の縫合糸用フィラメント
が、繊維径 14 μm、複屈折 0.060 であり、本発明により得られたフィラメント
が極細であり、また、配向度も市販品に近いことがわかる。

産業上の利用可能性

20 本発明は、生分解性フィラメントの延伸に関し、本発明の延伸された生分解性フ

ィラメントは、生分解性が要求される農業用ロープ、マルチ用不織布、オムツ用不織布等を使用され、また、生体内分解吸収性フィラメントは、手術用縫合糸や、不織布の形態で、縫合用補綴材や癒着防止材等を使用される。

請 求 の 範 囲

1. 原生分解性フィラメントが、赤外線光束で加熱されることにより、単糸あたり
5 10Mpa以下の張力によって、100倍以上の延伸倍率に延伸される、延伸さ
れた生分解性フィラメントの製造方法。
2. 請求の範囲第1項の前記張力が、原生分解性フィラメントの自己の自重により
与えられる張力である、延伸された生分解性フィラメントの製造方法。
3. 請求の範囲第1項の前記赤外線光束が、フィラメントの中心でフィラメントの
10 軸方向に上下4mm以内の範囲で、複数方向から加熱される、延伸された生分解
性フィラメントの製造方法。
4. 請求の範囲第1項において、前記延伸された生分解性フィラメントが、その後
に設けられた加熱ゾーンにより熱処理される、延伸された生分解性フィラメント
の製造方法。
- 15 5. 請求の範囲第4項における前記熱処理が、ゾーン熱処理法によって行われる、
延伸された生分解性フィラメントの製造方法。
6. 請求の範囲第1項における前記延伸された生分解性フィラメントが、さらに延
伸される、延伸された生分解性フィラメントの製造方法。
7. 請求の範囲第6項における前記さらに延伸が、ゾーン延伸法によってなされる、
20 延伸された生分解性フィラメントの製造方法。

8. 請求の範囲第1項における前記原生分解性フィラメントが、複数本同時に送り出され、同一光束内で同時に延伸される、延伸された生分解性フィラメントの製造方法。
9. 請求の範囲第1項における前記延伸された生分解性フィラメントが、走行する
5 コンベア上に集積される、延伸された生分解性フィラメントからなる不織布の製造方法。
10. 請求の範囲第1項における前記延伸された生分解性フィラメントの製造方法において、前記原生分解性フィラメントが自重によってもたらされる張力により延伸され、その後、所定の引き取り速度で延伸されていく、延伸された生分解性
10 フィラメントの延伸立ち上げ方法。
11. 生分解性フィラメントからなる原生分解性フィラメントの送出手段と、
送り出された原生分解性フィラメントに対して、複数箇所から赤外線光束が照射されることによって、原生分解性フィラメントの中心でフィラメントの軸方向に上下4 mm以内の範囲で加熱されるように構成されている赤外線加熱装置と、
15 該加熱された原生分解性フィラメントが10 MPa以下の張力が与えられることにより100倍以上に延伸されるように制御する手段と、
を有する、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。
12. 請求の範囲第11項の前記赤外線光束が、レーザー発振装置によって放射されるレーザーである、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。
- 20 13. 請求の範囲第11項の前記赤外線光束放射装置が、同一光束を反射させて、

原フィラメントに複数箇所からの照射させるための鏡を有する、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。

14. 請求の範囲第11項の前記赤外線光束放射装置が、複数の箇所から原フィラメントに照射させる複数の光源を有する、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。

15. 請求の範囲第12項の前記レーザー光束のパワー密度が、 $10\text{W}/\text{cm}^2$ 以上である炭酸ガスレーザーである、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。

16. 請求の範囲第11項の前記延伸された生分解性フィラメントの製造装置に、加熱ゾーンを有する加熱装置を設け、延伸された生分解性フィラメントが熱処理されるように構成されている、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。

17. 請求の範囲第11項における前記延伸された生分解性フィラメントの製造装置に、さらに延伸装置が付加されている延伸された生分解性フィラメントの製造装置。

18. 請求の範囲第11項において、前記原生分解性フィラメントが赤外線光束で加熱される前に、該フィラメントの位置を規制する案内具が設けられ、該案内具の案内位置を微調整できる位置制御装置を有する、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。

19. 請求の範囲第11項の前記延伸された生分解性フィラメントの製造装置に、走行するコンベアが設けられており、該コンベア上に延伸された生分解性フィラ

メントが集積されるように構成されている、延伸された生分解性フィラメントからなる不織布の製造装置。

20. 請求の範囲第11項における前記制御が、前記延伸された生分解性フィラメントの径を測定して、巻取速度または／および送出速度をコントロールするよう

5 に構成されている、延伸された生分解性フィラメントの製造装置。

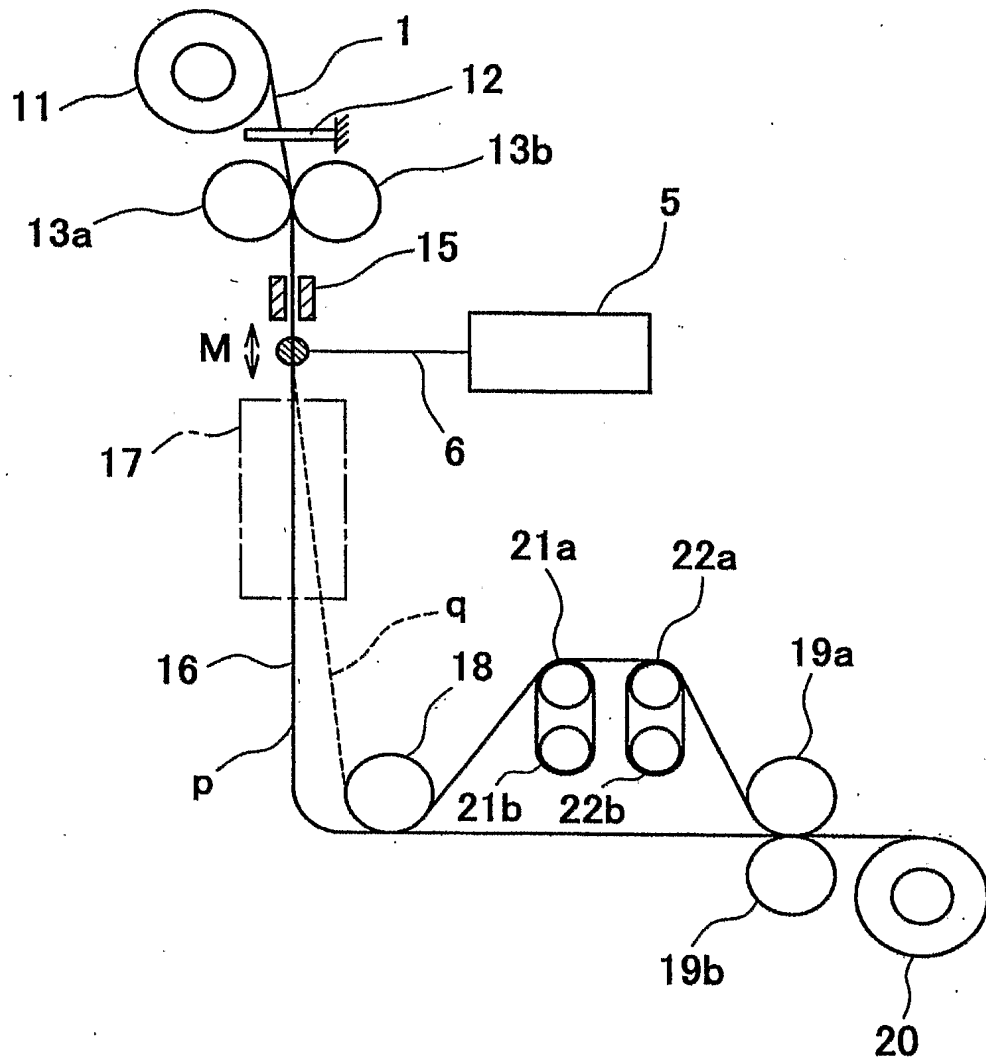
21. 請求の範囲第1項の前記延伸された生分解性フィラメントが、X線配向度が60%以上であり、該延伸されたフィラメントの径が $12\mu\text{m}$ 以下である、延伸された生分解性極細フィラメント。

22. 請求の範囲第1項の前記延伸された生分解性フィラメントが、ポリ乳酸またはポリグリコール酸からなり、該延伸されたフィラメントの複屈折が、0.015以上であり、該延伸されたフィラメントの径が $12\mu\text{m}$ 以下である、延伸された極細生分解性フィラメント。

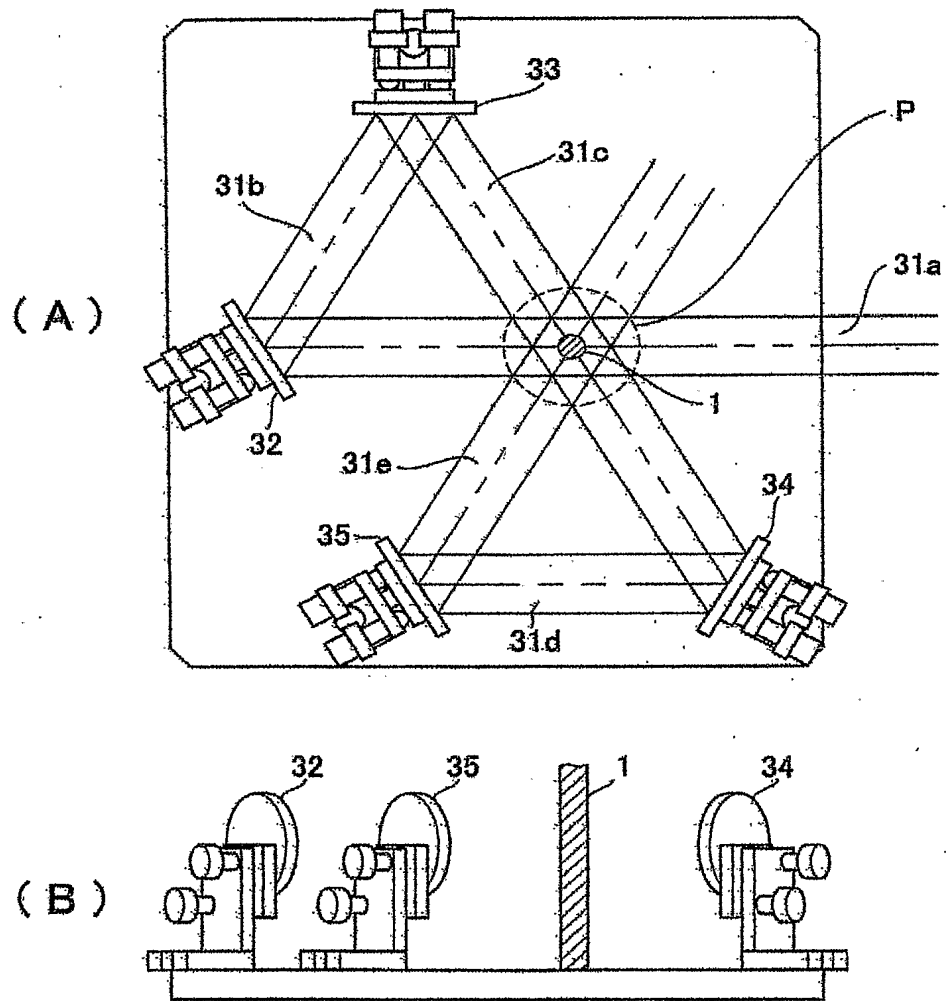
23. 請求の範囲第1項の前記延伸された生分解性フィラメントからなる、生分解生不織布。

15 24. 請求の範囲第1項の前記延伸された生分解性フィラメントからなる繊維製品群のそれぞれがフィラメント径を異にしており、該フィラメント径の相違により生分解性速度が異なる繊維製品群である、延伸された生分解性フィラメントからなる繊維製品。

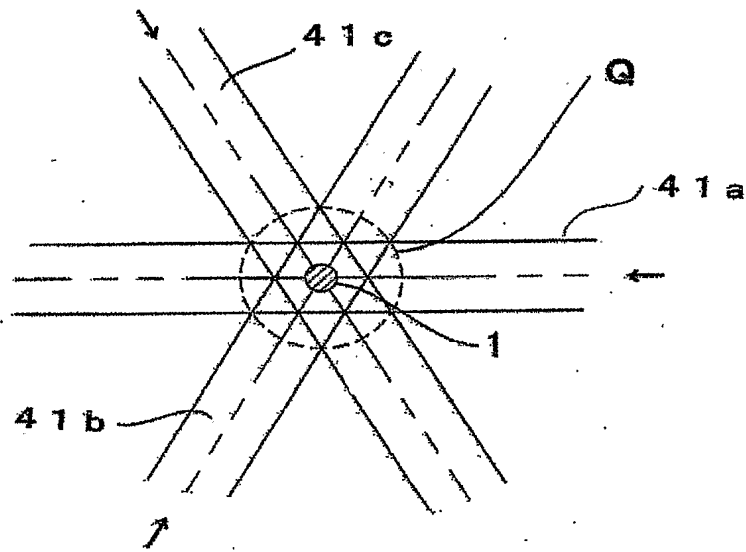
第1図



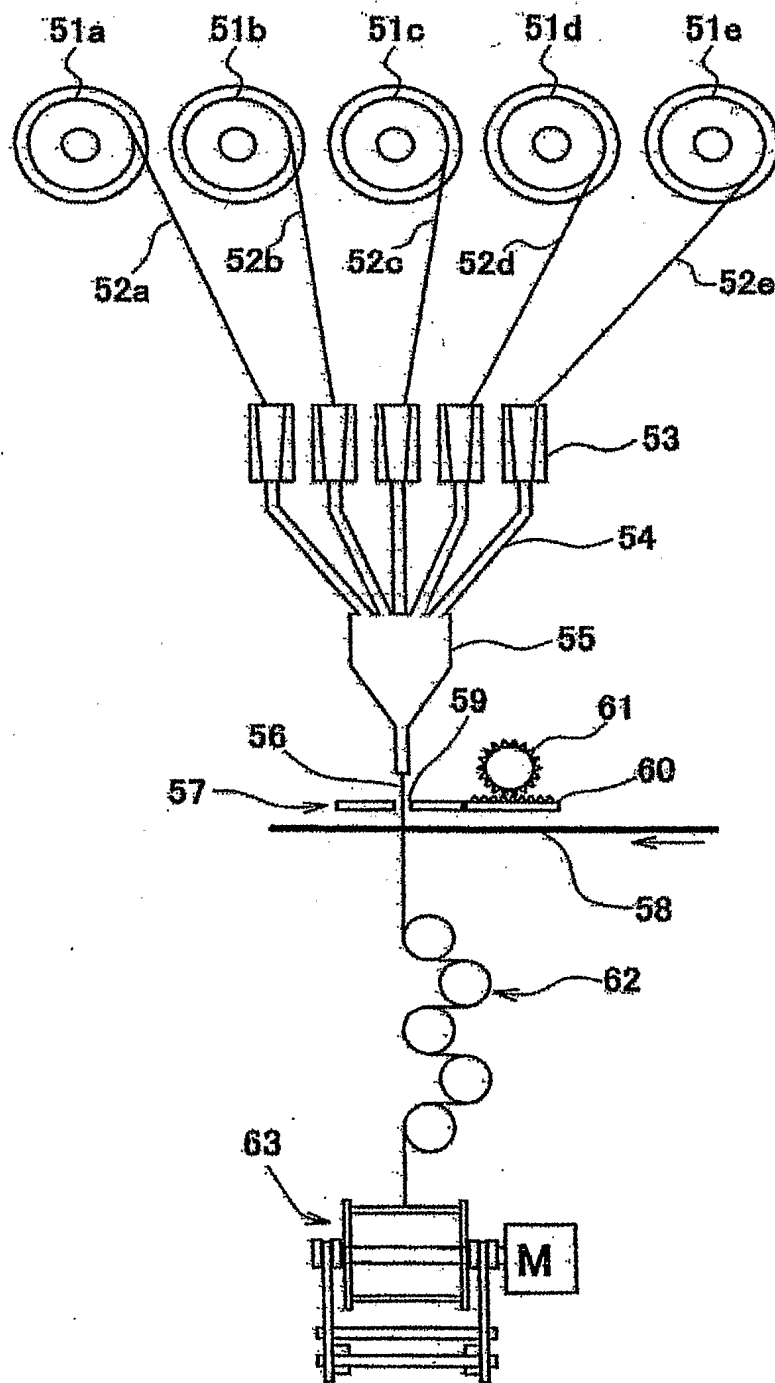
第 2 図



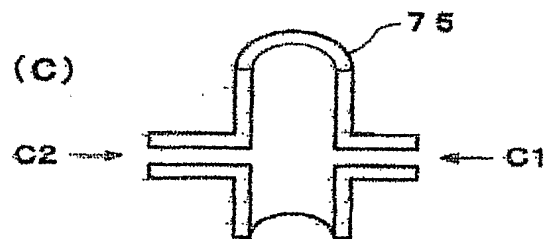
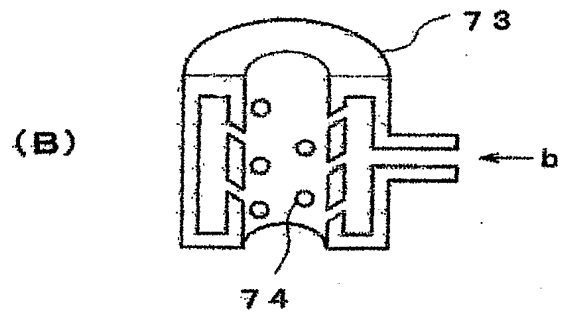
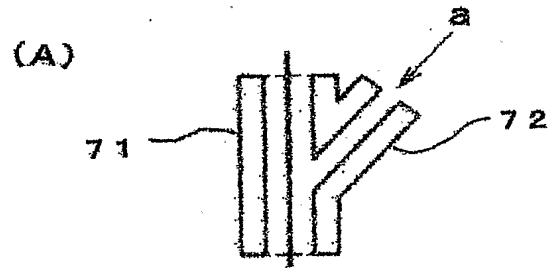
第3図



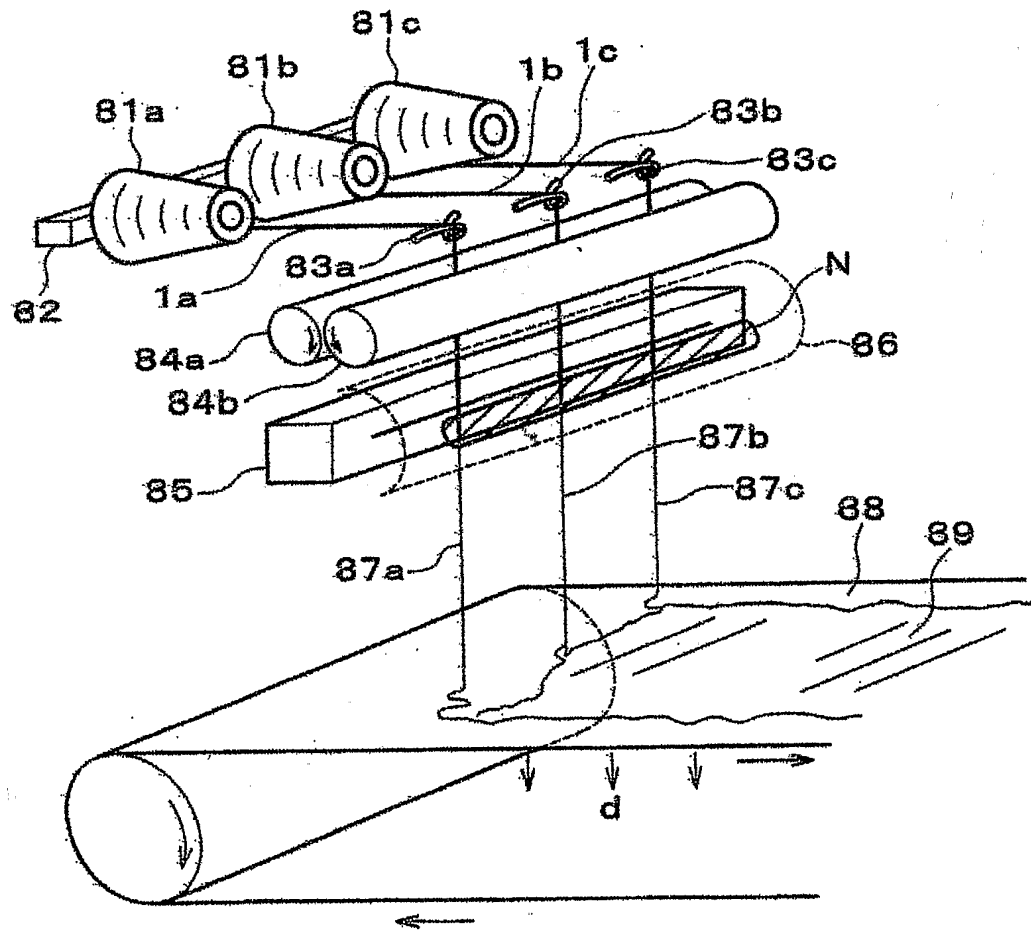
第4図



第5図



第 6 図



第7図

ポリ乳酸フィラメントの延伸による径と複屈折の変化

送出速度 0.5m/分

ワット密度 24W/cm²

| <u>巻取速度</u> | <u>フィラメント径</u> | <u>延伸倍率</u> | <u>複屈折</u> | <u>X線配向度</u> | <u>延伸張力</u> |
|-------------|----------------|-------------|-------------------|--------------|-------------|
| m/分 | μm | | ×10 ⁻³ | % | MPa |
| 100 | 5.02 | 223 | 6.89 | 61.8 | 2.5 |
| 200 | 3.97 | 357 | 10.26 | 75.2 | |
| 400 | 2.57 | 852 | 14.78 | 74.0 | |
| 600 | 1.75 | 1836 | 19.26 | 75.7 | 2.0 |
| 800 | 1.45 | 2675 | 20.29 | 73.4 | |
| 1200 | 1.45 | 2675 | 20.97 | | 0.6 |
| 1600 | 1.20 | 3906 | 23.25 | | 0.3 |
| 2000 | 1.20 | 3906 | 32.68 | | |

第8図

ポリ乳酸フィラメントの延伸による径と複屈折の変化

送出速度 0.5m/分

ワット密度 12W/cm²

| 巻取速度 | フィラメント径 | 延伸倍率 | 複屈折 | 延伸張力 |
|------|---------|------|--------------------|------|
| m/分 | μm | | × 10 ⁻³ | MPa |
| 100 | 4.98 | 227 | 11.66 | 0.3 |
| 200 | 4.50 | 278 | 13.16 | 2.7 |
| 400 | 3.29 | 520 | 13.97 | 0.9 |

第9図

ポリ乳酸フィラメントの再延伸と再熱処理による径と複屈折の変化

| 処理 | フィラメント径 | 延伸倍率 | 複屈折 |
|--------------|---------|-------|--------------------|
| | μm | | × 10 ⁻³ |
| レーザー延伸法 | 1.45 | 2674 | 20.29 |
| ゾーン延伸法 1 | 1.41 | 2829 | 30.28 |
| (延伸温度 80℃) | | | |
| ゾーン延伸法 2 | 0.60 | 15625 | |
| (延伸温度 80℃) | | | |
| ゾーン熱処理法 | 1.20 | 3906 | 40.63 |
| (熱処理温度 160℃) | | | |

第 10 図

ポリグリコール酸

送出速度 0.5 m/分

| フィラ メント | 巻取速度 m/分 | 繊維径 μm | 延伸倍率 | 複屈折 $\times 1000$ |
|--------------|-------------|----------------------|------|----------------------|
| 延伸フィ ラメント | 100 | 9.4 | 77 | 6.4 |
| | 300 | 5.7 | 208 | 7.0 |
| | 500 | 3.9 | 445 | 8.0 |
| | 700 | 3.3 | 427 | 11.3 |
| | 900 | 3.1 | 621 | 15.8 |
| | 1100 | 2.6 | 1025 | 17.5 |
| | 1300 | 2.3 | 1280 | 22.1 |
| | 1500 | 2.3 | 1280 | 27.0 |
| | 1700 | 2.2 | 1350 | 27.9 |

第 11 図

ポリグリコール酸

送出速度 0.5 m/分

| フィラ メント | 巻取速度 m/分 | 繊維径 μm | 延伸倍率 | 複屈折 $\times 1000$ |
|--------------|-------------|----------------------|------|----------------------|
| 延伸フィ ラメント | 100 | 16.0 | 167 | 5.3 |
| | 300 | 8.6 | 580 | 16.9 |
| | 500 | 5.1 | 1647 | 26.1 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/003257

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ D02J1/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ D02J, D02G, D01D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

| | | | |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho | 1922-1996 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2005 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2005 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2005 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPIL

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|---|-----------------------|
| X Y | JP 2003-166115 A (Akiyasu SUZUKI), 13 June, 2003 (13.06.03), Claims; examples; drawings (Family: none) | 11-20 1-10, 21-24 |
| Y | JP 2001-192932 A (Kuraray Co., Ltd.), 17 July, 2001 (17.07.01), Claims (Family: none) | 1-10, 21-24 |



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

01 June, 2005 (01.06.05)

Date of mailing of the international search report

21 June, 2005 (21.06.05)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ D02J1/22

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ D02J、D02G、D01D

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

| | |
|-------------|------------|
| 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2005年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2005年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2005年 |

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

W P I L

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|---|-------------------------|
| X Y | J P 2 0 0 3 - 1 6 6 1 1 5 A (鈴木章泰)、 2 0 0 3 . 0 6 . 1 3 特許請求の範囲、実施例、図 (ファミリーなし) | 11-20 1-10、 21-24 |
| Y | J P 2 0 0 1 - 1 9 2 9 3 2 A (株式会社クラレ) 2 0 0 1 . 0 7 . 1 7 特許請求の範囲 (ファミリーなし) | 1-10、 21-24 |

C 欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

01.06.2005

国際調査報告の発送日

21.06.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

平井 裕彰

電話番号 03-3581-1101 内線 3474

4S

9633